

**ORGANIC ELECTROLUMINESCENT MATERIAL**

**Patent number:** JP2001126875  
**Publication date:** 2001-05-11  
**Inventor:** SAKAKIBARA MITSUHIKO; TAKEUCHI YASUMASA;  
CHO TEIKOKU  
**Applicant:** JSR CORP; KOKUSAI KIBAN ZAIRYO KENKYUSHO;  
TOGEN DENKI KOFUN YUGENKOSHI  
**Classification:**  
**- international:** *C08L25/18; C08L39/04; H05B33/14; H05B33/22;*  
*C08L25/00; C08L39/00; H05B33/14; H05B33/22;*  
(IPC1-7): H05B33/22; C08L25/18; C08L39/04;  
H05B33/14  
**- european:**  
**Application number:** JP19990306406 19991028  
**Priority number(s):** JP19990306406 19991028

**Report a data error here**

**Abstract of JP2001126875**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an organic electroluminescent material which can be used for producing an organic electroluminescent device having high light emitting efficiency. **SOLUTION:** The material comprises a polymer (A) of poly-N-vinylcarbazole and a polymer (B) of poly-2-&beta;-naphthyl-5-(4-vinylphenyl)-oxadiazole in a certain ratio.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

This Page Blank (uspto)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-126875

(P 2 0 0 1 - 1 2 6 8 7 5 A)

(43) 公開日 平成13年 5月11日 (2001. 5. 11)

| (51) Int. Cl. <sup>7</sup> | 識別記号 | F I        | テーマコード (参考) |
|----------------------------|------|------------|-------------|
| H05B 33/22                 |      | H05B 33/22 | D 3K007     |
| C08L 25/18                 |      | C08L 25/18 | 4J002       |
| 39/04                      |      | 39/04      |             |
| H05B 33/14                 |      | H05B 33/14 | A           |

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平11-306406

(22) 出願日 平成11年10月28日 (1999. 10. 28)

(71) 出願人 000004178

ジェイエスアール株式会社

東京都中央区築地 2 丁目 11 番 24 号

(71) 出願人 597114270

株式会社国際基盤材料研究所

神奈川県川崎市高津区坂戸 3 丁目 2 番 1 号

(71) 出願人 597114281

東元電機股▲ふん▼有限公司

台湾台北市松江路156-2

(74) 代理人 100078754

弁理士 大井 正彦

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス材料

(57) 【要約】

【課題】 発光効率が高い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることのできる有機エレクトロルミネッセンス材料を提供すること。

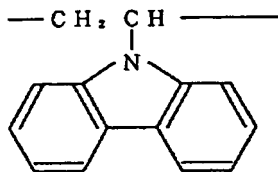
【解決手段】 ポリ N-ビニルカルバゾールからなる重合体 (A) と、ポリ 2-β-ナフチル-5-(4-ビニルフェニル)-オキサジアゾールからなる重合体 (B) とを、特定の割合で含有してなることを特徴とする。

## 【特許請求の範囲】

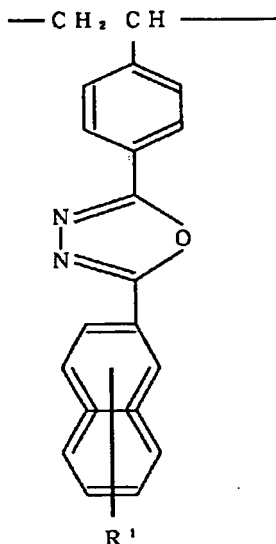
【請求項1】 下記式(1)で表される構造単位を有する重合体(A)を、当該構造単位換算で50モル%以上100モル%未満の割合で含有し、

下記式(2)で表される構造単位を有する重合体(B)

式(1)



式(2)



【式(2)中、R<sup>1</sup> は水素原子、アルキル基またはアリール基を示す。】

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、例えばエレクトロルミネッセンス素子などを構成するために好適に用いられる有機エレクトロルミネッセンス材料に関する。

## 【0002】

【従来の技術】近年、エレクトロルミネッセンス素子を構成する正孔輸送材料および電子輸送材料として、有機材料が使用され始めており、このような有機材料から構成される有機エレクトロルミネッセンス素子(以下、「有機EL素子」という。)の研究が活発に行われている。かかる有機EL素子を構成する有機材料においては、優れた耐久性を有するものであること、高い発光効率が得られるものであることが要求される。

【0003】従来、正孔輸送性能を有する有機材料としては、ジアミン誘導体、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-4, 4', ジアミノビフェニル(以下、「TPD」ともいう。)等のアリールアミン系化合物などの低分子有機材料が知られている。然るに、上記の低分子有機材料は、物理的または熱的な耐久性に乏しいものであるため、当該低分子有機材料により正孔輸送層を構成する場合には、有機EL素子

を、当該構造単位換算で50モル%以下の割合で含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス材料。

## 【化1】

の駆動中または保存中に当該正孔輸送層が変質してしまう、という欠点がある。

【0004】一方、電子輸送材料としては、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(以下、「PBD」ともいう。)が知られているが、このPBDよりなる薄膜は安定性に欠ける、という問題がある。

## 30 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、以上のような事情に基づいてなされたものであって、その目的は、発光効率が高く、耐久性に優れた有機EL素子を得ることのできる重合体組成物からなる有機エレクトロルミネッセンス材料を提供することにある。

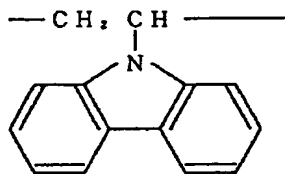
## 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明の有機エレクトロルミネッセンス材料は、下記式(1)で表される構造単位を有する重合体(A)を、当該構造単位換算で50モル%以上100モル%未満の割合で含有し、下記式

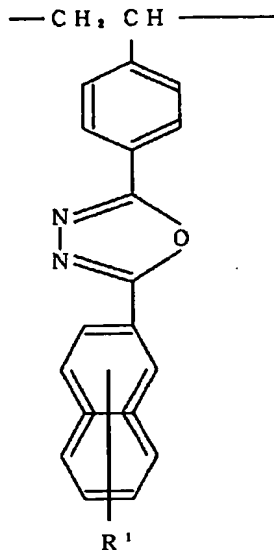
(2)で表される構造単位を有する重合体(B)を、当該構造単位換算で50モル%以下の割合で含有することを特徴とする。

## 【0007】

## 【化2】

3  
式(1)

式(2)



【0008】〔式(2)中、R<sup>1</sup> は水素原子、アルキル基またはアリール基を示す。〕

【0009】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。

〔重合体成分〕本発明の有機エレクトロルミネッセンス材料(以下、「有機EL材料」という。)は、重合体(A)と重合体(B)との重合体組成物からなる。かかる重合体組成物を構成する重合体(A)は、ポリN-ビニルカルバゾールであり、重合体(B)は、ポリ2-β-ナフチル-5-(4-ビニルフェニル)-オキサジアゾールである。

【0010】本発明において、重合体(A)であるポリN-ビニルカルバゾールの分子量は、5,000以上であることが好ましく、10,000以上であることが特に好ましい。重合体(A)の分子量が5,000未満の場合には、これを含有してなる重合体組成物は、耐熱性および安定性が不十分なものとなりやすい。一方、この分子量が過大となる場合(例えば1,000,000を超える場合)には、これを含有してなる重合体組成物は、その溶液粘度が著しく高いものとなりやすく、また、作業性が低下するため好ましくない。

【0011】重合体(B)であるポリ2-β-ナフチル-5-(4-ビニルフェニル)-オキサジアゾールの平均分子量は、1,000以上であることが好ましい。重合体(B)の分子量が1,000未満の場合には、これを含有してなる重合体組成物は、耐熱性、安定性および機械的強度が不十分なものとなりやすい。一方、この分子量が過大となる場合(例えば1,000,000を超える場合)には、これを含有してなる重合体組成物は、その溶液粘度が著しく高いものとなりやすく、有機EL素子の製造において、ハンドリング性が低下し、また、溶液の糸引き性が生じるため、好ましくない。

【0012】本発明の有機EL材料において、重合体(A)の含有割合は、上記式(1)に示す構造単位換算で50モル%以上100モル%未満とされ、好ましくは70~99モル%とされる。また、重合体(B)の含有割合は、上記式(2)に示す構造単位換算で50モル%以下とされ、好ましくは1~30モル%とされる。有機EL材料中の重合体(A)の含有割合が50モル%未満である場合〔重合体(B)の含有割合の含有割合が50モル%を超える場合〕には、正孔輸送性が少なくなり、また電子トラップ性能が不十分なものとなる。

【0013】本発明の有機EL材料は、重合体(A)および重合体(B)が溶剤に溶解された状態で構成されていてもよい。この場合において、重合体(A)および重合体(B)についての含有割合は、当該有機EL材料を構成する重合体成分〔重合体(A)および重合体(B)〕における構造単位換算の割合である。

【0014】〔重合体の製造方法〕次に、本発明の有機EL材料を構成する重合体(A)および重合体(B)の製造方法について説明する。本発明の有機EL材料を構成する重合体は、カチオン重合法、ラジカル重合法およびアニオン重合法のいずれかの方法によって製造することができる。

【0015】(1)カチオン重合法：この方法においては、適宜の重合溶媒中において、例えばN-ビニルカルバゾール(ホール輸送性モノマー)をカチオン重合触媒の存在下にカチオン重合(リビング重合)することにより、重合体(A)であるポリN-ビニルカルバゾールが得られる。

【0016】カチオン重合法により重合体(A)または重合体(B)を製造する場合において、重合溶媒としては、メチレンクロライド、クロロベンゼンなどに代表されるハロゲン化炭化水素類、ジブチルエーテル、ジフェニルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフランなどの

エーテル系溶媒、アセトニトリル、ニトロベンゼンなどの高極性溶媒などを用いることができる。カチオン重合触媒としては、 $\text{HI-ZnI}_2$ 、 $\text{I}_2$ 、 $\text{I}_2\text{-HI}$ などの触媒を用いることができ、その他には、メタルハライド・エーテル錯体などのルイス酸と塩基とを組み合わせる触媒を用いることもできる。このようなカチオン重合触媒の使用割合は、モノマー1モルに対して0.01～0.00001モルである。カチオン重合反応における反応温度は、例えば-150～50℃である。

【0017】(2)ラジカル重合法：この方法においては、適宜の重合溶媒中において、例えば2-β-ナフチル-5-(4-ビニルフェニル)-オキサジアゾール(電子輸送性モノマー)をラジカル重合触媒の存在下にラジカル重合することにより、重合体(B)であるポリ2-β-ナフチル-5-(4-ビニルフェニル)-オキサジアゾールが得られる。

【0018】ラジカル重合法により重合体(A)または重合体(B)を製造する場合において、重合溶媒としては、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドンなどのアミド系溶媒、ベンゼン、トルエン、キシレン、ヘキサン、シクロヘキサン等の炭化水素系溶媒、γ-ブチロラクトン、乳酸エチル等のエステル類、シクロヘキシルベンゾフェノン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒などを用いることができる。ラジカル重合触媒としては、 $\text{BPO}$ などの過氧化物や $\text{AIBN}$ などのアゾ系化合物触媒を用いることができる。このようなラジカル重合触媒の使用割合は、モノマー1モルに対して0.01～0.00001モルである。ラジカル重合反応における反応温度は、例えば60～200℃である。

【0019】〔有機EL材料の製造方法〕本発明の有機EL材料(重合体(A)および重合体(B)が溶剤に含有されてなる有機EL材料)は、下記〔I〕～〔II〕の方法によって製造することができる。

【0020】〔I〕重合体(A)および重合体(B)のそれぞれを溶剤に溶解して重合体溶液を調製し、これらを混合する方法。ここに、調製される重合体溶液における重合体の濃度は10重量%以下であることが好ましく、更に好ましくは0.5～5重量%とされる。また、重合体の溶解処理は、不活性ガスの雰囲気下で行うことが好ましい。

【0021】〔II〕重合体(A)と重合体(B)とを混合(混練)し、得られる混合物を溶剤に溶解する方法。

【0022】上記〔I〕～〔II〕の方法において、使用される溶剤としては、重合体を調製する際の重合溶媒として例示した溶剤を挙げることができる。なお、上記

〔I〕～〔II〕の方法により得られる溶液は、不活性ガスの雰囲気下、はじめに、0.5ミクロンフィルターで濾過処理し、ついで、0.1ミクロンのフィルターで濾過処理することが好ましい。

【0023】〔有機EL素子〕本発明の有機EL材料によれば、例えば以下のような構成の有機EL素子を得ることができる。図1は、本発明の有機EL材料を使用して得られる有機EL素子の構成の一例を示す説明用断面図である。この有機EL素子においては、ガラス基板1上に、陽極(正孔注入電極)としてITO膜2が設けられ、このITO膜2上には、本発明の有機EL材料を塗布し、乾燥して形成した正孔輸送層3が設けられ、さらにAlq(トリス8-オキシキノリンアルミニウム)からなる発光層4が設けられ、さらにその上に、陰極(電子注入電極)としてマグネシウム銀アロイ膜5(Mg:銀=10:1(重量比))が設けられている。このような有機EL素子においては、直流電源6により、ITO膜2とマグネシウム銀アロイ膜5との間に直流電圧が印加されると、発光層4が発光し、この光は、正孔輸送層3、ITO膜2およびガラス基板1を介して放射される。上記の構成の有機EL素子によれば、本発明の有機EL材料よりなる正孔輸送層3が設けられており、当該正孔輸送層3自体が電荷輸送能を有するため、高い発光効率を得られる。

【0024】

【実施例】以下、本発明の実施例について説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、以下において、「部」は、「重量部」を意味する。

【0025】〔重合体溶液の調製〕窒素気流下において、容量500ミリリットルの耐圧容器内に、重合体(A)であるポリN-ビニルカルバゾール(分子量:20,000)およびクロロホルムを入れ、重合体(A)のクロロホルム溶液(濃度:1重量%)を調製した(これを「溶液(A)」とする。)

【0026】他方、窒素気流下において、容量500ミリリットルの容器内に、重合体(B)であるポリ2-β-ナフチル-5-(4-ビニルフェニル)-オキサジアゾール(分子量:5,900)およびクロロホルムを入れ、重合体(B)のクロロホルム溶液(濃度:1重量%)を調製した(これを「溶液(B)」とする。)。この溶液(B)を、0.5ミクロンフィルターで濾過処理し、さらに、0.1ミクロンのフィルターで濾過処理した。

【0027】＜実施例1～5＞重合体(A)と重合体(B)との割合が下記表1に示す割合(構造単位換算でのモル比)となるように、前記溶液(A)と、前記溶液(B)とを混合することにより、本発明の有機EL材料を製造した。

【0028】＜比較例1＞ポリN-ビニルカルバゾール(平均分子量1,300)を準備した。

【0029】＜比較例2＞ポリ2-β-ナフチル-5-(4-ビニルフェニル)-オキサジアゾール(平均分子量28,000)を準備した。

【0030】＜評価＞実施例1～実施例5および比較例

1～比較例2で得られた有機EL材料の各々を用い、以下のようにして図1に示す構成の有機EL素子を作製した。

【0031】有機EL材料を、クロロベンゼン/クロロホルム混合溶剤（重量比が2/8）に溶解し、この溶液を、スピンコーターによって、ITO膜（2）が表面に形成された5cm角のガラス基板（1）上に塗布した後、溶剤の除去処理を行うことにより、厚みが400Åの正孔輸送層（3）を形成した。次いで、この正孔輸送層（3）上に、A1qからなる厚みが600Åで5mm 10

角の発光層（4）と、厚みが2000Åで5mm角のマグネシウム銀アロイ膜（5）とを蒸着法によって形成して有機EL素子を作製した。このようにして作製された有機EL素子について、ITO膜（2）を陽極とし、マグネシウム銀アロイ膜（5）を陰極として直流電圧を印加し、発光層（4）を発光させた。有機EL素子に印加した電圧値および発光輝度を表1に示す。

【0032】

【表1】

|      | 重合体の含有割合〔モル%〕 |        | 発光開始電圧〔V〕 | 印加した電圧値〔V〕 | 発光輝度〔cd/m <sup>2</sup> 〕 |
|------|---------------|--------|-----------|------------|--------------------------|
|      | 重合体（A）        | 重合体（B） |           |            |                          |
| 実施例1 | 80            | 20     | 8         | 18         | 3,400                    |
| 実施例2 | 80            | 20     | 8         | 13         | 5,900                    |
| 実施例3 | 80            | 20     | 8         | 16         | 6,000                    |
| 実施例4 | 90            | 10     | 8         | 17         | 4,000                    |
| 実施例5 | 60            | 40     | 14        | 26         | 950                      |
| 比較例1 | 20            | 80     | 発光せず      | 発光せず       | 発光せず                     |
| 比較例2 | 0             | 100    | 10        | 16         | 300                      |

【0033】表1から明らかなように、実施例1～5に係る有機EL材料を使用して形成された正孔輸送層

（3）を有する有機EL素子は、比較例1に係る有機EL材料（ポリN-ビニルカルバゾール）を使用して形成された正孔輸送層を有する有機EL素子および比較例2に係る有機EL材料（ポリ2-β-ナフチル-5-（4-ビニルフェニル）-オキサジアゾール）を使用して形成された正孔輸送層を有する有機EL素子に比べ、高い 30 発光輝度が得られることが確認された。

【0034】

【発明の効果】本発明の有機EL材料によれば、ポリN-ビニルカルバゾールよりなる重合体（A）により正孔輸送性能が発現され、ポリ2-β-ナフチル-5-（4-ビニルフェニル）-オキサジアゾールよりなる重合体（B）により電子輸送性能が発現される。そして、当該重合体（A）と当該重合体（B）との割合が特定の範囲

に規定されていることにより、発光輝度が高い優れた有機EL素子を得ることができる。このような組成物は、正孔輸送性能を有する重合体（A）および電子輸送性能を有する重合体（B）の両方が含有されてなるものであるので、この重合体組成物により得られる有機EL素子は、発光効率が高いものとなる。

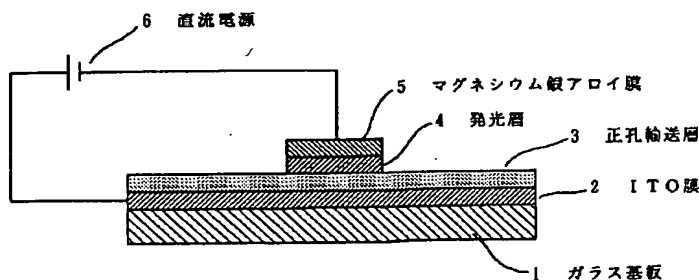
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機EL材料を使用して得られる有機EL素子の構成の一例を示す説明用断面図である。

【符号の説明】

- 1 ガラス基板
- 2 ITO膜
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 マグネシウム銀アロイ膜
- 6 直流電源

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 榊原 満彦  
東京都中央区築地 2 丁目 11 番 24 号 ジェイ  
エスアール株式会社内  
(72)発明者 竹内 安正  
東京都中央区築地 2 丁目 11 番 24 号 ジェイ  
エスアール株式会社内

(72)発明者 丁 定国  
東京都目黒区鷹番 3 丁目 23 番 10 号  
F ターム(参考) 3K007 AB02 AB03 CA01 CB01 DA00  
DB03 EB00 FA01  
4J002 BC102 BJ001 GQ00